

Patent 17 FEB 2005

PCT/JP03/10888

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

27.08.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2002年 8月30日

出願番号  
Application Number: 特願2002-253540  
[ST. 10/C]: [JP2002-253540]

出願人  
Applicant(s): 東レ・ダウコーニング・シリコン株式会社

REC'D 17 OCT 2003

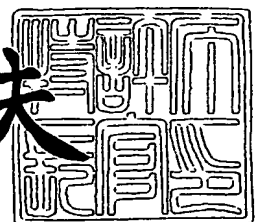
WIPO PCT

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年10月 1日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願

【整理番号】 P0001795

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 C08L 83/04  
C08J 3/03  
A61K 7/00

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市原市千種海岸 2 番 2 東レ・ダウコーニング・シリコーン株式会社 研究開発本部内

【フリガナ】 モリタ ヨシツグ

【氏名】 森田 好次

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市原市千種海岸 2 番 2 東レ・ダウコーニング・シリコーン株式会社 研究開発本部内

【フリガナ】 コハヤシ カズオ

【氏名】 小林 和男

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市原市千種海岸 2 番 2 東レ・ダウコーニング・シリコーン株式会社 研究開発本部内

【フリガナ】 村キ マサル

【氏名】 尾崎 勝

【特許出願人】

【識別番号】 000110077

【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内一丁目 1 番 3 号

【氏名又は名称】 東レ・ダウコーニング・シリコーン株式会社

【代表者】 齊藤 圭史郎

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 057222

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

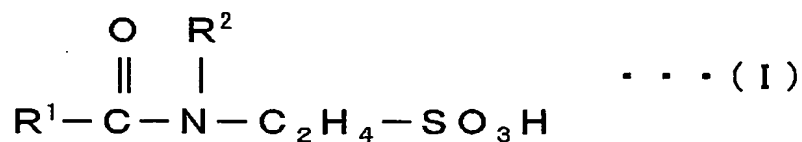
【書類名】 明細書

【発明の名称】 架橋シリコーン粒子の水系サスペンション、架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンおよび化粧料原料

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 (A)平均粒径  $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$  の架橋シリコーン粒子、  
(B)一般式 (I) ；

【化 1】



(式中、 $\text{R}^1$ および $\text{R}^2$ は非置換もしくは置換の一価炭化水素基である。)で示されるN-アシル、N-ヒドロカーボントウリンおよび／またはその塩、  
および、

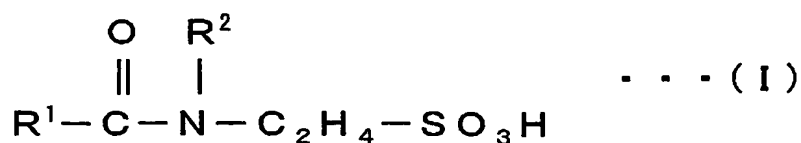
(C)水からなることを特徴とする、架橋シリコーン粒子の水系サスペンション。

【請求項 2】 (A)成分が非架橋性オイルを含有する架橋シリコーン粒子であることを特徴とする、請求項 1 に記載の水系サスペンション。

【請求項 3】 (A)成分が25～80重量%、(B)成分が0.001～20重量%、(C)成分が5～75重量%からなることを特徴とする、請求項 1 に記載の水系サスペンション。

【請求項 4】 (A)平均粒径  $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$  の架橋シリコーン粒子、  
(D)オイル、  
(B)一般式 (I) ；

【化 2】



(式中、 $\text{R}^1$ および $\text{R}^2$ は非置換もしくは置換の一価炭化水素基である。)で示さ

れるN-アシル, N-ハイドロカーボントウリンおよび/またはその塩、  
および、

(C)水からなり、水中に分散している(D)成分の液滴中に(A)成分が含有されていることを特徴とする、架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョン。

【請求項5】 (A)成分を含有する(D)成分が25～90重量%、(B)成分が0.001～20重量%、(C)成分が5～75重量%からなることを特徴とする、請求項4に記載の水系エマルジョン。

【請求項6】 請求項1～3のいずれか1項に記載の水系サスペンションからなる化粧料原料。

【請求項7】 請求項4または請求項5に記載の水系エマルジョンからなる化粧料原料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、架橋シリコーン粒子の水系サスペンション、架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンおよび化粧料原料に関する。詳しくは、安定性に優れ、しかも、環境に対する負荷や人体に対する影響が少ない架橋シリコーン粒子の水系サスペンション、架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンおよび化粧料原料に関する。

【0002】

【従来の技術】

架橋シリコーン粒子、界面活性剤および水からなる架橋シリコーン粒子の水系サスペンションや、架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンは知られている（特開昭63-309565号公報、特開平11-140191号公報、特開2000-281903号公報参照）。そしてこのようなサスペンションを水性塗料に添加すると塗膜に艶消し性が発現したり（特開平5-9409号公報参照）、水性化粧料に使用すると使用感が向上することが提案されている（特開平10-139624号公報および特開平10-175816号公報参照）。

）。

#### 【0003】

これらの水系サスペンションや水系エマルジョンには、非イオン性界面活性剤、アニオン性界面活性剤、カチオン性界面活性剤、両イオン性界面活性剤またはこれらの混合物からなる界面活性剤が用いられており、特に化粧料用途に使用する場合には、架橋シリコーン粒子や架橋シリコーン粒子を含有するオイルの分散性が良好であることから、アルキルポリエーテルなどの非イオン性界面活性剤が好適に用いられている。

#### 【0004】

近年、これらの水系サスペンションや水系エマルジョンにおいて、それ自体の安定性や配合物への分散性を向上させつつ、環境に対する負荷の少ない界面活性剤の選択が求められている。例えば、炭素数12～15のアルキル基を有するアルキルポリエーテルは環境への影響が懸念される化学物質として、P R T R (Pollutant Release and Transfer Register)の排出量等が義務付けられた指定化学物質に認定され、その使用が制限されるようになってきている。また、原料が牛脂等の獣脂由来の界面活性剤、特に、獣脂由来のアルキル基を有する界面活性剤は、厚生省医薬安全局長の「ウシ等由来物を原料として製造される医薬品等の品質及び安全性確保について(平成12年12月12日付け)」の通達により、化粧料等への使用が制限されつつある。

#### 【0005】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明者らは上記の課題を解決するため鋭意検討した結果、架橋シリコーン粒子の水系サスペンションや架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンに使用する界面活性剤として、特定のN-アシル, N-ハイドロカーボンタウリンおよび／またはその塩を選択することにより、上記の課題を解決できることを見出して本発明に到達した。

#### 【0006】

すなわち、本発明の目的は、安定性に優れ、しかも、環境に対する負荷や人体に対する影響が少ない架橋シリコーン粒子の水系サスペンションおよび架橋シリ

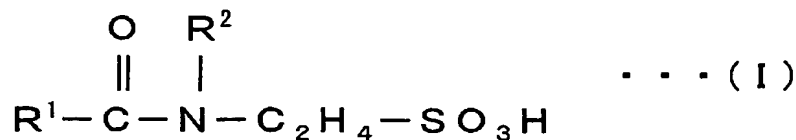
コーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョン、これらの水系サスペンションや水系エマルジョンを使用した化粧品原料を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】

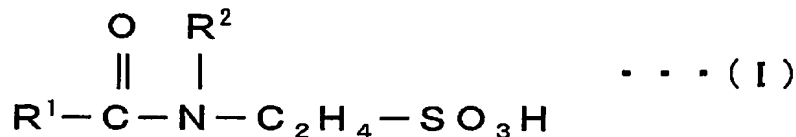
本発明は、(A)平均粒径0.1～500 $\mu$ mの架橋シリコーン粒子、  
(B)一般式 (I) ；

【化3】



(式中、R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>は非置換もしくは置換の一価炭化水素基である。)で示されるN-アシル, N-ヒドロカーボントウリンおよび/またはその塩、  
(C)水からなることを特徴とする架橋シリコーン粒子の水系サスペンション、および、該水系サスペンションからなる化粧品原料と、  
(A)平均粒径0.1～500 $\mu$ mの架橋シリコーン粒子、  
(D)オイル、  
(B)一般式 (I) ；

【化4】



(式中、R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>は非置換もしくは置換の一価炭化水素基である。)で示されるN-アシル, N-ヒドロカーボントウリンおよび/またはその塩、  
(C)水からなり、水中に分散している(D)成分の液滴中に(A)成分が含有されていることを特徴とする架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョン、および、該水系エマルジョンからなる化粧品原料に関する。

【0008】

**【発明の実施の形態】**

はじめに、本発明の架橋シリコーン粒子の水系サスペンションについて詳細に説明する。

(A)架橋シリコーン粒子は本発明サスペンションの主成分であり、その平均粒径は $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$ であり、好ましくは $0.1 \sim 100 \mu\text{m}$ であり、さらに好ましくは $0.1 \sim 50 \mu\text{m}$ であり、特に好ましくは $0.5 \sim 50 \mu\text{m}$ である。これは、平均粒径が上記範囲の下限未満である架橋シリコーン粒子は調製が難しく、また、上記範囲の上限を超えると化粧料や塗料等への分散性が低下する傾向があるからである。(A)成分の形状としては、例えば、球状、扁平形状、不定形状が挙げられ、化粧料や塗料等への分散性が特に良好であることから球状であることが好ましい。また、(A)成分の性状としては、例えば、硬質ゴム状、軟質ゴム状、ゲル状が挙げられる。

**【0009】**

このような(A)成分を構成する架橋性シリコーン組成物として具体的には、ヒドロシリル化反応架橋性シリコーン組成物、縮合反応架橋性シリコーン組成物、有機過酸化物架橋性シリコーン組成物、紫外線架橋性シリコーン組成物が挙げられる。これらの中でも、ヒドロシリル化反応架橋性シリコーン組成物や縮合反応架橋性シリコーン組成物が好ましい。

**【0010】**

ヒドロシリル化反応架橋性シリコーン組成物としては、例えば、アルケニル基を一分子中に少なくとも2個有するオルガノポリシロキサン、ケイ素原子結合水素原子を一分子中に少なくとも2個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンおよび白金系触媒を主成分とする組成物が挙げられる。

**【0011】**

縮合反応架橋性シリコーン組成物としては、例えば、ケイ素原子に結合する水酸基またはアルコキシ基、オキシム基、アセトキシ基、アミノキシ基等の加水分解性基を一分子中に少なくとも2個有するオルガノポリシロキサン、ケイ素原子に結合するアルコキシ基、オキシム基、アセトキシ基、アミノキシ基等の加水分解性基を一分子中に少なくとも3個有するシラン系架橋剤および、有機錫化合物



、有機チタン化合物等の縮合反応触媒を主成分とする組成物が挙げられる。好ましくは、ケイ素原子に結合する水酸基またはアルコキシ基を一分子中に少なくとも2個有するオルガノポリシロキサン、ケイ素原子に結合するアルコキシ基を一分子中に少なくとも3個有するシラン系架橋剤および、有機錫化合物、有機チタン化合物等の縮合反応触媒を主成分とする脱アルコール縮合反応架橋性シリコーン組成物である。

#### 【0012】

また、(A)成分は非架橋性オイルを含有することができる。このオイルは特に限定されないが、シリコーンオイル、有機オイルが挙げられる。非架橋性シリコーンオイルの分子構造としては、例えば、直鎖状、一部分岐を有する直鎖状、環状、分岐鎖状が挙げられ、好ましくは直鎖状、環状である。このようなシリコーンオイルとしては、例えば、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、環状ジメチルシロキサン、これらのシリコーンオイル中のメチル基の一部を、エチル基、プロピル基、ブチル基等のアルキル基、フェニル基、または3,3,3-トリフルオロプロピル基等で置換したシリコーンオイル、およびこれらのシリコーンオイルの混合物が挙げられる。非架橋性有機オイルとしては、例えば、流動パラフィン、イソパラフィン、ラウリン酸ヘキシル、ミリスチン酸イソプロピル、ミリスチン酸ミリスチル、ミリスチン酸セチル、ミリスチン酸2-オクチルドデシル、パルミチン酸イソプロピル、パルミチン酸2-エチルヘキシル、ステアリン酸ブチル、オレイン酸デシル、オレイン酸2-オクチルドデシル、乳酸ミリスチル、乳酸セチル、酢酸ラノリン、ステアリルアルコール、セトステアリルアルコール、オレイルアルコール、アボガド油、アルモンド油、オリブ油、カカオ油、ホホバ油、ゴマ油、サフラワー油、大豆油、ツバキ油、スクワラン、パーシック油、ヒマシ油、綿実油、ヤシ油、ポリプロピレングリコールモノオレート、ネオペンチルグリコール-2-エチルヘキサノエート、イソステアリン酸トリグリセライド、椰子油脂肪酸トリグリセライド、ポリオキシエチレンラウリルエーテル、ポリオキシプロピレンセチルエーテルが挙げられる。これらの中でも、架橋シリコーン粒子に対する親和性が優れることからシリコーンオイルが好ましい。またその25℃における粘度は、 $100,000\text{ mm}^2/\text{s}$ 以下で

あることが好ましく、 $50,000\text{mm}^2/\text{s}$ 以下がより好ましく、 $10,000\text{mm}^2/\text{s}$ 以下がさらに好ましい。(A)成分中における非架橋性オイルの含有量は限定されないが、好ましくは50重量%以下であり、より好ましくは30重量%以下であり、さらに好ましくは10重量%以下である。これは、50重量%を超えると、(A)成分中に非架橋性オイルを保持しておくことができず、後記する架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンが形成される可能性があるためである。このような非架橋性オイルを含有する架橋シリコーン粒子は、前記の架橋性シリコーン組成物に非架橋性オイルを配合したり、架橋性シリコーン組成物の原料として低分子量シロキサンオリゴマーを含有するオルガノポリシロキサンを使用することによって製造することができる。

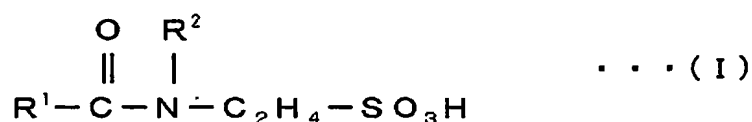
### 【0013】

本発明サスペンション中、(A)成分の含有量は限定されないが、好ましくは25～80重量%であり、より好ましくは40～80重量%である。これは、(A)成分の含有量が上記範囲の下限未満であるとその用途が限定される懸念があり、一方、上記範囲の上限を超えると取扱作業性が低下して、化粧料や塗料等への分散性が低下する傾向があるからである。

### 【0014】

(B)N-アシル、N-ハイドロカーボントウリンおよび／またはその塩は本発明の特徴となる成分であり、界面活性剤として作用する。加えて、本発明サスペンション単独の安定性だけでなく他成分に配合した際の分散性や安定性を向上させ、しかも環境や人体に配慮した成分である。このような(B)成分は、一般式(I)；

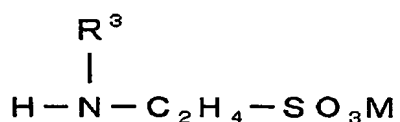
### 【化5】



で示されるN-アシル、N-ハイドロカーボントウリンまたはその塩である。上式中、 $\text{R}^1$ および $\text{R}^2$ は非置換もしくは置換の一価炭化水素基であり、具体的には

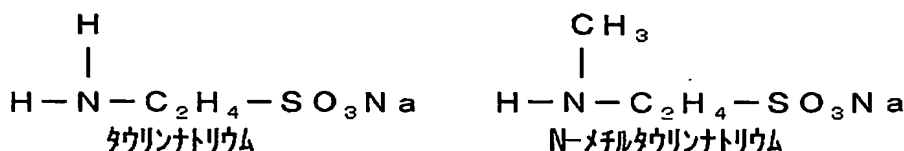
、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基、ミリスチル基、パルミチル基、ステアリル基などのアルキル基；ビニル基、アリル基、ヘキセニル基、オレイル基などのアルケニル基；シクロペンチル基、シクロヘキシル基などのシクロアルキル基；フェニル基、トリル基、ナフチル基などのアリール基が例示される。この  $R^1$  および  $R^2$  は同一でも異なってもよいが、 $R^1$  はアルキル基かアルケニル基かシクロアルキル基が好ましく、炭素原子数 5 ～ 30 のアルキル基またはアルケニル基がより好ましい。 $R^2$  はアルキル基が好ましく、メチル基が一般的である。N-アシルタウリンとは、一般に、上式において窒素原子に水素原子が結合した化合物 ( $R^2$  が水素原子である化合物) を指すが、本発明で使用する N-アシル, N-ハイドロカーボントウリンは、窒素原子にアシル基と一価炭化水素基が結合していることを特徴とする。また、N-アシル, N-ハイドロカーボントウリンの塩とは、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属の水酸化物；炭酸ナトリウム等のアルカリ金属の弱酸塩；アンモニア、トリエタノールアミン、水酸化アンモニウム等の水溶性アミン；塩基性アミノ酸；タウリン塩のようなアルカリ性物質との中和によって形成される塩である。中和剤としてのタウリン塩は、一般式：

## 【化 6】



(式中、 $R^3$  は水素原子またはアルキル基であり、M はアルカリ金属である。) で示され、具体的には、次式で示される化合物が例示される。

## 【化7】



このような (B) 成分としては、N-ラウロイルメチルタウリンナトリウム、N-ミリストイルメチルタウリンナトリウム、N-オレオイルメチルタウリンナトリウム、N-ステアロイルメチルタウリンナトリウム、N-ヤシ油脂肪酸メチルタウリンナトリウム、N-ヤシ油脂肪酸メチルタウリンカリウム、N-ヤシ油脂肪酸メチルタウリンマグネシウム、N-パルミトイルメチルタウリンナトリウム、N-ステアロイルメチルタウリンカリウム、N-セチロイルメチルタウリンカリウムおよびこれらの未中和物が例示される。これら 1 種を単独で使用してもよく、複数組み合わせ合わせた混合物を使用してもよい。

## 【0015】

本発明サスペンション中、(B)成分の含有量は限定されないが、好ましくは 0.001～20 重量%であり、特に好ましくは 0.01～10 重量%である。これは、(B)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると化粧料や塗料等への分散性が低下する傾向があり、一方、上記範囲の上限を超えるとその用途が限定される懸念があるためである。

## 【0016】

(C)水は(A)成分の分散媒であり、例えば、純水、イオン交換水を用いることができる。本発明サスペンション中、(C)成分の含有量は限定されないが、好ましくは 5～75 重量%であり、特に好ましくは 10～60 重量%である。

## 【0017】

さらに本発明サスペンションには、その他任意の成分として、例えば、フェノキシエタノール、エタノール、i-プロパノール、t-ブタノール、エチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール等のアルコール；カルボキシビニルポリマー、カルボキシメチルセルロースナトリウム等の水溶性高分

子；アミノ基含有シリコーンやポリエーテル基含有シリコーンなどの有機ケイ素系化合物、その他、防腐剤、抗菌剤、防カビ剤、防錆剤、芳香剤、顔料を配合することができる。また、本発明の目的を損なわない範囲であれば、他の成分との配合安定性をさらに向上させるために、ノニオン系界面活性剤以外の各種界面活性剤、例えば、アニオン系界面活性剤、カチオン系界面活性剤、両性界面活性剤を使用してもよい。これらの成分は、単独あるいは複数組み合わせ使用してもよい。またその配合手順は特に限定されない。

#### 【0018】

本発明サスペンションを調製する方法は限定されず、例えば、(B)成分、(C)成分およびその他任意の成分からなる水溶液中に、前記したような架橋性シリコーン組成物を添加して分散させた後、該組成物を架橋する方法、また、前記したような架橋性シリコーン組成物から架橋触媒を除いたシリコーン組成物を、(B)成分、(C)成分およびその他任意の成分からなる水溶液中に添加して分散させた後、前記触媒を添加することにより、前記組成物を架橋する方法が挙げられる。後者の方法において、架橋触媒は、(B)成分の水溶液中に分散させた状態で添加することが好ましい。

#### 【0019】

次に、本発明の架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンについて詳細に説明する。

(A)架橋シリコーン粒子は本発明エマルジョンの主成分であり、その平均粒径は $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$ であり、好ましくは $0.1 \sim 100 \mu\text{m}$ であり、より好ましくは $0.1 \sim 50 \mu\text{m}$ であり、特に好ましくは $0.5 \sim 50 \mu\text{m}$ である。これは、平均粒径が上記範囲の下限未満である架橋シリコーン粒子は調製が困難であり、一方、平均粒径が上記範囲の上限を超えるとエマルジョンの安定性を低下させる傾向があるからである。(A)成分の形状としては、例えば、球状、扁平形状、不定形状が挙げられるが、これらの中でも球状が好ましい。また、(A)成分の性状としては、例えば、硬質ゴム状、軟質ゴム状、ゲル状が挙げられる。

#### 【0020】

本発明エマルジョンにおいて、(A)成分を構成する架橋性シリコーン組成物と

しては、例えば、ヒドロシリル化反応架橋性シリコーン組成物、縮合反応架橋性シリコーン組成物、有機過酸化物架橋性シリコーン組成物、紫外線架橋性シリコーン組成物が挙げられる。これらの中でも、ヒドロシリル化反応架橋性シリコーン組成物や縮合反応架橋性シリコーン組成物が好ましく、前記と同様の組成物が例示される。

#### 【0021】

(D)オイルも本発明エマルジョンの主成分であり、特に限定されないが、例えば、シリコーンオイル、有機オイルが挙げられ、前記した非架橋性オイルと同様のものが例示される。中でも、架橋シリコーン粒子に対する親和性が優れていることからシリコーンオイルが好ましい。またその25℃における粘度は、100,000 $\text{mm}^2/\text{s}$ 以下であることが好ましく、50,000 $\text{mm}^2/\text{s}$ 以下がより好ましく、10,000 $\text{mm}^2/\text{s}$ 以下がさらに好ましい。このような(D)成分は液滴の形態で水中に分散し、その中に(A)架橋シリコーン粒子を含有する。従って(D)成分の液滴の平均粒径は(A)成分よりも大きく、具体的には、0.5~1000 $\mu\text{m}$ であることが好ましく、より好ましくは1~100 $\mu\text{m}$ である。

#### 【0022】

(D)成分の含有量は限定されず、(A)成分の吸油性に依存するが、(A)成分と(D)成分の合計重量に対して、好ましくは50重量%を超える量であり、特に好ましくは60重量%以上である。これは、(D)成分の含有量が50重量%以下であると(A)成分中に含有されてしまい、(D)成分中に(A)成分を含有することができなくなる懸念があるからである。

#### 【0023】

本発明エマルジョン中における(A)成分と(D)成分の含有量、即ち、架橋シリコーン粒子を含有するオイル液滴の含有量は限定されないが、好ましくは25~90重量%の範囲内であり、より好ましくは40~80重量%である。これは、上記範囲の下限未満であると用途が限定される懸念があり、一方、上記範囲の上限を超えると取扱作業性が低下して、化粧料や塗料等への分散性が低下する傾向があるからである。

#### 【0024】

(B)N-アシル, N-ヒドロカーボントウリンおよび／またはその塩は本発明の特徴となる成分であり、界面活性剤として作用する。加えて、本発明エマルジョン単独の安定性だけでなく他成分に配合した際の分散性や安定性を向上させ、しかも環境や人体に配慮した成分である。具体的には、前記と同様のものが挙げられる。

#### 【0025】

本発明エマルジョン中、(B)成分の含有量は限定されないが、好ましくは0.001～20重量%であり、特に好ましくは0.01～10重量%である。これは、(B)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると化粧料や塗料等への分散性が低下する傾向があり、一方、上記範囲の上限を超えると用途が限定される懸念があるからである。

#### 【0026】

(C)水は分散媒であり、例えば、純水、イオン交換水を用いることができる。本発明エマルジョン中、(C)成分の含有量は限定されないが、好ましくは5～75重量%であり、特に好ましくは10～60重量%である。

#### 【0027】

さらに本発明エマルジョンには、その他任意の成分として、例えば、フェノキシエタノール、エタノール、i-プロパノール、t-ブタノール、エチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール等のアルコール；カルボキシビニルポリマー、カルボキシメチルセルロースナトリウム等の水溶性高分子；アミノ基含有シリコンやポリエーテル基含有シリコンなどの有機ケイ素系化合物、その他、防腐剤、抗菌剤、防カビ剤、防錆剤、芳香剤、顔料を配合することができる。また、本発明の目的を損なわない範囲であれば、他の成分との配合安定性をさらに向上させるために、アニオン系界面活性剤、カチオン系界面活性剤、両性界面活性剤、ノニオン系界面活性剤等の各種界面活性剤を使用してもよい。これらの成分は、単独あるいは複数組み合わせ使用してもよい。またその配合手順は特に限定されない。

#### 【0028】

本発明エマルジョンを調製する方法は限定されず、例えば、(B)成分、(C)成

分およびその他任意の成分からなる水溶液中に、(D)成分を含有する架橋性シリコーン組成物を添加して分散させた後、前記組成物を架橋する方法、また、前記したような架橋性シリコーン組成物から架橋触媒を除き、かつ、(D)成分を含有するシリコーン組成物を、(B)成分、(C)成分およびその他任意の成分からなる水溶液中に添加して分散させた後、前記触媒を添加することにより、前記組成物を架橋する方法が挙げられる。後者の方法において、架橋触媒は(B)成分の水溶液中に分散させた状態で添加することが好ましい。

#### 【0029】

以上のような本発明の水系サスペンションおよび水系エマルジョンは安定性に優れ、かつ、環境に対する負荷や人体に対する影響が少ないという特徴を有する。さらに、化粧料や塗料等に対する分散性や配合安定性が良好であり、これらに配合した場合に架橋シリコーン粒子の添加効果を十分に発揮することができるので、化粧料原料や塗料原料として有用である。特に、人体への適合性に優れるとともに潤いや滑らかさ等に優れた化粧機能性を有するので、化粧料に配合するシリコーン原料として極めて好適である。

#### 【0030】

次に、本発明の化粧料原料について説明する。

本発明の化粧料原料は、上記した水系サスペンションや水系エマルジョンからなるが、本発明の目的を損なわない範囲であれば、化粧料との配合安定性をさらに向上させるために、シリコーンエマルジョンからなる化粧料原料の添加剤として公知である他の成分を添加配合することが可能である。このような添加剤としては、(B)成分以外のアニオン系界面活性剤、ノニオン系界面活性剤、pH調整剤、防腐剤、防カビ剤、防錆剤などが挙げられる。これらの成分は、単独あるいは複数組み合わせ使用することができる。これらの成分の配合順序は、特に限定されない。本発明の化粧料原料において、上記した水系サスペンションや水系エマルジョンの含有量は、30～100重量%であることが好ましく、50～100重量%であることがより好ましい。

#### 【0031】

アニオン系界面活性剤の具体例としては、N-アシル-L-グルタミン酸ジエ



タノールアミン、N-アシル-L-グルタミン酸トリエタノールアミン、N-アシル-L-グルタミン酸ナトリウム、アルカンスルホン酸ナトリウム、アルキル（12, 14, 16）硫酸アンモニウム、アルキル（11, 13, 15）硫酸トリエタノールアミン（1）、アルキル（11, 13, 15）硫酸トリエタノールアミン（2）、アルキル（12~14）硫酸トリエタノールアミン、アルキル硫酸トリエタノールアミン液、アルキル（12, 13）硫酸ナトリウム、アルキル硫酸ナトリウム液、イセチオン酸ナトリウム、イソステアリン乳酸ナトリウム、ウンデシレノイルアミドエチルスルホコハク酸二ナトリウム、オレイン硫酸トリエタノールアミン、オレイン硫酸ナトリウム、オレイン酸アミドスルホコハク二ナトリウム、オレイン酸カリウム、オレイン酸ナトリウム、オレイン酸モルホリン、オレオイルザルコシン、オレオイルメチルタウリンナトリウム、カリウム含有石けん素地、カリウム石けん用素地液、カリ石ケン、カルボキシル化ポリオキシエチレントリドデシルエーテル、カルボキシル化ポリオキシエチレントリドデシルエーテルナトリウム塩（3 E. O.）、N-硬化牛脂脂肪酸アシル-L-グルタミン酸トリエタノールアミン、N-硬化牛脂脂肪酸アシル-L-グルタミン酸ナトリウム、硬化ヤシ油脂肪酸グリセリル硫酸ナトリウム、ジウンデシレノイルアミドエチルスルホコハク酸ナトリウム、ステアリル硫酸ナトリウム、ステアリン酸カリウム、ステアリン酸トリエタノールアミン、ステアリン酸ナトリウム、N-ステアロイル-L-グルタミン酸ナトリウム、ステアロイル-L-グルタミン酸二ナトリウム、スルホコハク酸ジオクチルナトリウム、スルホコハク酸ジオクチルナトリウム液、スルホコハク酸ポリオキシエチレンモノオレイルアミドジナトリウム（2 E. O.）液、スルホコハク酸ポリオキシエチレンラウロイルエタノールアミド二ナトリウム（5 E. O.）、スルホコハク酸ラウリル二ナトリウム、セチル硫酸ジエタノールアミド、セチル硫酸ナトリウム、石けん用素地、セトステアリル硫酸ナトリウム、トリデシル硫酸トリエタノールアミン、パルミチン酸カリウム、パルミチン酸ナトリウム、パルミトイルメチルタウリンナトリウム、ヒマシ油脂肪酸ナトリウム液（30%）、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸アンモニウム（3 E. O.）液、ポリオキシエチレンアルキル（12, 13）エーテル硫酸ジエタノールアミン（3 E. O.）液、ポリオキシエチ

レンアルキルエーテル硫酸トリエタノールアミン (3 E. O.) 液、ポリオキシエチレンアルキル (11, 13, 15) エーテル硫酸トリエタノールアミン (1 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキル (12, 13) エーテル硫酸トリエタノールアミン (3 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸ナトリウム (3 E. O.) 液、ポリオキシエチレンアルキル (11, 13, 15) エーテル硫酸ナトリウム (1 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキル (11~15) エーテル硫酸ナトリウム (3 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキル (12, 13) エーテル硫酸ナトリウム (3 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキル (12~14) エーテル硫酸ナトリウム (3 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキル (12~15) エーテル硫酸ナトリウム (3 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキル (12~14) スルホコハク酸二ナトリウム (7 E. O.)、ポリオキシエチレンウンデシルエーテル硫酸ナトリウム、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル硫酸ナトリウム液、ポリオキシエチレンオレイルエーテル硫酸アンモニウム、ポリオキシエチレンスルホコハク酸ラウリル二ナトリウム、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル硫酸ナトリウム、ポリオキシエチレンペンタデシルエーテル硫酸ナトリウム、ポリオキシエチレンミリスチルエーテル硫酸トリエタノールアミン、ポリオキシエチレンミリスチルエーテル硫酸ナトリウム、ポリオキシエチレンミリスチルエーテル硫酸ナトリウム (3 E. O.)、ポリオキシエチレンラウリルエーテル酢酸ナトリウム (16 E. O.) 液、ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸アンモニウム (2 E. O.)、ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸トリエタノールアミン、ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸ナトリウム、ミリスチル硫酸ジエタノールアミン、ミリスチル硫酸ナトリウム、ミリスチン酸カリウム、N-ミリストイル-L-グルタミン酸ナトリウム、ミリストイルメチルアミノ酢酸ナトリウム、ミリストイルメチル-β-アラニンナトリウム液、ミリストイルメチルタウリンナトリウム、薬用石ケン、ヤシ油アルキル硫酸マグネシウム・トリエタノールアミン、N-ヤシ油脂肪酸アシル-L-グルタミン酸トリエタノールアミン、N-ヤシ油脂肪酸アシル-L-グルタミン酸ナトリウム、ヤシ油脂肪酸エチルエステルスルホン酸ナトリウム、ヤシ油脂肪酸カリウム、ヤシ油脂肪酸カリウム液、N-ヤシ油脂肪酸・硬化

牛脂脂肪酸アシルーL-グルタミン酸ナトリウム、ヤシ油脂肪酸サルコシン、ヤシ油脂肪酸サルコシントリエタノールアミン、ヤシ油脂肪酸サルコシンナトリウム、ヤシ油脂肪酸トリエタノールアミン、ヤシ油脂肪酸トリエタノールアミン液、ヤシ油脂肪酸ナトリウム、ヤシ油脂肪メチルアラニンナトリウム、ヤシ油脂肪メチルアラニンナトリウム液、ヤシ油脂肪酸メチルタウリンカリウム、ヤシ油脂肪酸メチルタウリンナトリウム、ラウリルアミノジプロピオン酸ナトリウム、ラウリルアミノジプロピオン酸ナトリウム液（30%）、ラウリルスルホ酢酸ナトリウム、ラウリルベンゼンスルホン酸ナトリウム、ラウリル硫酸、ラウリル硫酸アンモニウム、ラウリル硫酸カリウム、ラウリル硫酸ジエタノールアミン、ラウリル硫酸トリエタノールアミン、ラウリル硫酸ナトリウム、ラウリル硫酸マグネシウム、ラウリル硫酸モノエタノールアミン、ラウリン酸カリウム、ラウリン酸トリエタノールアミン、ラウリン酸トリエタノールアミン液、ラウリン酸ナトリウム、ラウリン酸ミリスチン酸トリエタノールアミン、ラウロイルーL-グルタミン酸トリエタノールアミン、N-ラウロイルーL-グルタミン酸ナトリウム、ラウロイルサルコシン、ラウロイルサルコシンナカリウム、ラウロイルサルコシントリエタノールアミン液、ラウロイルサルコシンナトリウム、ラウロイルメチルβ-アラニンナトリウム液、ラウロイルメチルタウリンナトリウム、ラウロイルメチルタウリンナトリウム液が挙げられる。

### 【0032】

ノニオン系界面活性剤の具体例としては、エチレングリコール脂肪酸エチル類、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル類、プロピレングリコール脂肪酸エステル類、ポリプロピレングリコール脂肪酸エステル類、グリコール脂肪酸エステル類、トリメチロールプロパン脂肪酸エステル類、ペンタエリスリット脂肪酸エステル類、グルコシド誘導体類、グリセリンアルキルエーテル脂肪酸エステル類、トリメチロールプロパンオキシエチレンアルキルエーテル類、脂肪酸アミド類、アルキロールアミド類、アルキルアミンオキシド類、ラノリンおよびその誘導体類、ヒマシ油誘導体類、硬化ヒマシ油誘導体類、ステロールおよびその誘導体類、ポリオキシエチレンアルキルエーテル類、ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル類、ポリオキシエチレンアルキルアミン類、ポリオキシエチレン脂肪

酸アミド類、ポリオキシエチレンアルキロールアミド類、ポリオキシエチレンジエタノールアミン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレントリメチロールプロパン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレンアルキルエーテル脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレングリコール類、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレンアルキルエーテル類、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレン多価アルコールエーテル類、グリセリン脂肪酸エステル類、ポリグリセリン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル類、ソルビタン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル類、ショ糖脂肪酸エステル類が挙げられる。

#### 【0033】

pH調整剤の具体例としては、塩酸、硫酸、リン酸、リン酸水素ニアンモニウム、リン酸水素ナトリウム、リン酸水素カリウム、リン酸ニ水素アンモニウム、リン酸ニ水素ナトリウム、リン酸ニ水素カリウム、リン酸三ナトリウム、リン酸三カリウム、酢酸、酢酸アンモニウム、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、クエン酸、クエン酸ナトリウム、クエン酸ニアンモニウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸アンモニウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素アンモニウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、アンモニア、トリエタノールアミンが挙げられる。

#### 【0034】

防腐剤、防カビ剤、防錆剤の具体例としては、安息香酸、安息香酸アルミニウム、安息香酸ナトリウム、イソプロピルメチルフェノール、エチルヘキサノール、塩化リゾチーム、塩酸クロルヘキシジン、オクチルフェノキシエタノール、オルトフェニルフェノール、過ホウ酸ナトリウム、感光素101号、感光素201号、感光素301号、感光素401号、グルコン酸クロルヘキシジン液、クレゾール、クロラミンT、クロルキシレノール、クロルクレゾール、クロルフェネシン、クロルヘキシジン、クロロブタノール、酢酸レゾルシン、サリチル酸、サリチル酸ナトリウム、臭化ドミフェン、ジンクピリチオン、ジンクピリチオン液、ソルビン酸、サオルビン酸カリウム、チアントール、チオキソロン、チモール、チラム、デヒドロ酢酸、デヒドロ酢酸ナトリウム、トリクロロカルバニリド

、トリクロロヒドロキシジフェニルエーテル、パラオキシ安息香酸イソブチル、パラオキシ安息香酸イソプロピル、パラオキシ安息香酸エチル、パラオキシ安息香酸ブチル、パラオキシ安息香酸プロピル、パラオキシ安息香酸ベンジル、パラオキシ安息香酸メチル、パラオキシ安息香酸メチルナトリウム、パラクロルフェノール、パラフェノールスルホン酸ナトリウム（二水和物）、ハロカルバン、フェノキシエタノール、フェノール、ヘキサクロロファン、モノニトログアヤコール、モノニトログアヤコールナトリウム、ヨウ化パラジメチルアミノスチリルヘプチルメチルリアゾリニウム、ラウリルトリメチルアンモニウムトリクロロフェノキサイド、硫酸オキシキノリン、リン酸オキシキノリン、レゾルシンが挙げられる。

### 【0035】

このような本発明の化粧料原料は、次のような各種原料に添加混合することにより、皮膚に対する適合性が良好であり、かつ、優れた潤いや滑らかさを付与し得る皮膚用化粧料が得られる。皮膚用化粧料の各種原料としては、前述のアニオン系界面活性剤、ノニオン系界面活性剤、pH調整剤、防腐剤、防カビ剤、防錆剤などの他に、アボガド油、アルモンド油、オリーブ油、カカオ脂、ゴマ油、小麦胚芽油、サフラワー油、シアバター、タートル油、椿油、パーシク油、ヒマシ油、ブドウ油、マカデミアナッツ油、ミンク油、卵黄油、モクロウ、ヤシ油、ローズヒップ油、硬化油等の油脂；オレンジラフィー油、カルナウバロウ、キャンデリラロウ、鯨ロウ、ホホバ油、モンタンロウ、ミツロウ、ラノリン等のロウ類；流動パラフィン、ワセリン、パラフィン、セレシン、マイクロクリスタリンワックス、スクワラン等の炭化水素；ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸、ベヘニン酸、ウンデシレン酸、オキシステアリン酸、リノール酸、ラノリン酸、合成脂肪酸等の高級脂肪酸；エチルアルコール、イソプロピルアルコール、ラウリルアルコール、セチルアルコール、セトステアリルアルコール、ステアリルアルコール、オレイルアルコール、ベヘニルアルコール、ラノリンアルコール、水素添加ラノリンアルコール、ヘキシルデカノール、オクチルドデカノール、イソステアリルアルコール等のアルコール；コレステロール、ジヒドロコレステロール、フィトステロール等のステロール；リノール

酸エチル、ミリスチン酸イソプロピル、ラノリン脂肪酸イソプロピル、ラウリン酸ヘキシル、ミリスチン酸ミリスチル、ミリスチン酸セチル、ミリスチン酸オクチルドデシル、オレイン酸デシル、オレイン酸オクチルドデシル、ジメチルオクタノ酸ヘキシルデシル、イソオクタノ酸セチル、パルミチン酸セチル、トリミリスチン酸グリセリン、トリ（カプリル・カプリン酸）グリセリン、ジオレイン酸プロピレングリコール、トリイソステアリン酸グリセリン、トリイソオクタノ酸グリセリン、乳酸セチル、乳酸ミリスチル、リンゴ酸ジイソステアリル等の脂肪酸エステル；グリセリン、プロピレングリコール、1, 3-ブチレングリコール、ポリエチレングリコール、d, 1-ピロリドンカルボン酸ナトリウム、乳酸ナトリウム、ソルビトール、ヒアルロン酸ナトリウム等の保湿剤；カチオン界面活性剤；ベタイン型、アミノ酸型、イミダゾリン型、レシチン等の両性界面活性剤；酸化鉄等の有色顔料、酸化亜鉛、酸化チタン、酸化ジリコニウム等の白色顔料、マイカ、タルク、セリサイト等の体質顔料等の顔料；ジメチルポリシロキサン、メチルフェニルポリシロキサン、オクタメチルテトラシクロシロキサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、ポリエーテル変性シリコーンオイル、アミノ変性シリコーンオイル等のシリコーンオイル；精製水；カラギーナン、アルギン酸、アラビアゴム、トラガント、ペクチン、デンプン、キサンタンガム、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸ソーダ、ポリエチレングリコール等の増粘剤、シリコーン・アクリル共重合体、シリコーンレジンやアクリルポリマー等の皮膜形成剤、さらには、紫外線吸収剤、抗菌剤、抗炎症剤、制汗剤、香料、酸化防止剤、噴射剤が例示される。尚、皮膚用化粧品として具体的には、ハンドクリーム、スキนครリーム、ファンデーション、アイシャドウ、洗顔料、ボディーシャンプーが挙げられる。

### 【0036】

また、本発明の化粧品原料を毛髪用化粧品に使用する場合には、前述のアニオン系界面活性剤、ノニオン系界面活性剤、pH調整剤や防腐剤、防カビ剤、防錆剤などの他に、皮膜形成剤、凍結防止剤、油分、乳化剤、湿潤剤、ふけ止め剤、酸化防止剤、キレート剤、紫外線吸収剤、香料、着色料といった各種原料を配合することによって、毛髪への付着性が良好であり、かつ、優れた潤いや滑らかさ

を付与し得る毛髪用化粧料を得ることができる。皮膜形成剤として具体的には、  
(メタ) アクリル系ラジカル重合性モノマーの重合体やシリコン系化合物との  
共重合体、ポリ (N-アシルアルキレンイミン)、ポリ (N-メチルピロリドン)  
、フッ素基含有有機基やアミノ基で変性したシリコンレジンを無官能性のシリ  
コンレジンを例示される。凍結防止剤は特に限定されないが、一般的には、  
エタノール、イソプロピルアルコール、1,3-ブチレングリコール、エチレン  
グリコール、プロピレングリコール、グリセリンが挙げられる。油分としては、  
通常化粧料に用いられるものが使用できる。代表的な例として、マイクロクリス  
タリンワックス、パラフィンワックス、ゲイろう、ビーズワックス、ジャパンワ  
ックス、ショ糖ワックス等のワックス類またはそれらの混合物、流動パラフィン  
、 $\alpha$ -オレフィンオリゴマー、スクワラン、スクワレン等の炭化水素油またはこ  
れらの混合物、セタノール、ステアシルアルコール、イソステアシルアルコール  
、硬化ヒマシ脂誘導アルコール、ベヘニルアルコール、ラノリンアルコール等の  
直鎖状もしくは分岐状の飽和もしくは不飽和の非置換もしくはヒドロキシ置換高  
級アルコールまたはこれらの混合物、パルミチン酸、ミリスチン酸、オレイン酸  
、ステアリン酸、ヒドロキシステアリン酸、イソステアリン酸、ベヘニア酸、ヒ  
マシ油脂肪酸、ヤシ油脂肪酸、牛脂脂肪酸等の直鎖状もしくは分岐状の飽和もし  
くは不飽和の非置換もしくはヒドロキシ置換高級脂肪酸またはこれらの混合物、  
オリーブ油、ヤシ油、なたね油、パーム油、パーム核油、ヒマシ油、硬化ヒマシ  
油、落花生油、牛脂、水添牛脂、ホホバ油、硬化ホホバ油、モノステアリン酸グ  
リセリド、モノオレイン酸グリセリド、ジパルミチン酸グリセリド、トリミリス  
チン酸グリセリド、オレイルオレート、イソステアシルイソステアレート、パル  
ミチルベヘネート、イソプロピルパルミテート、ステアシルアセテート、ジヒド  
ロキシステアリン酸エステル等のエステル、直鎖状、分枝状または環状の低分子  
量シリコンオイル、アミノ変性シリコンオイル、脂肪酸変性シリコンオイル、  
アルコール変性シリコンオイル、ポリエーテル変性シリコンオイル、リン  
酸(塩)基含有シリコンオイル、硫酸(塩)基含有シリコンオイル、フッ素変  
性アルキル基含有シリコンオイル、アルキル変性シリコンオイル、エポキシ  
変性シリコンオイル等のシリコンオイル、高分子量シリコン、溶剤に可溶

で、室温で液状や生ゴム状、または熱可塑性を有するシリコーンレジンまたはこれらの混合物が挙げられる。これらのシリコーンは乳液状であることが好ましく、乳化剤としては、例えば、グリセリンモノステアレート、ソルビタンモノパルミテート、ポリオキシエチレンセチルエーテル、ポリオキシエチレンステアリン酸エステルおよびポリオキシエチレンソルビタンモノラウレートのような、従来一般的に使用されているものが挙げられる。湿潤剤としては、ヘキシレングリコール、ポリエチレングリコール600、ピログルタミン酸ソーダ、グリセリンが挙げられる。ふけ止め剤としては、イオウ、硫化セレン、ジंकピリジウム-1-チオール-N-オキサイド、サリチル酸、2, 4, 4'-トリクロロ-2'-ヒドロキシジフェニルエーテル、1-ヒドロキシ-2-ピリドン化合物が例示される。酸化防止剤としては、BHA、BHT、γ-オリザノールが挙げられる。キレート剤としては、エチレンジアミン4酢酸、クエン酸、エタン-1-ヒドロキシ-1, 1-ジホスホニックアシッドおよびその塩が例示される。紫外線吸収剤としては、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノンに代表されるベンゾフェノン誘導体、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)-ベンゾトリアゾールに代表されるベンゾトリアゾール誘導体、桂皮酸エステル等が例示される。さらには、グリセリン、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1, 3-ブチレングリコール等の多価アルコール、モノアルキルトリメチルアンモニウム塩、ジアルキルジメチルアンモニウム塩等の4級アンモニウム塩が好ましく、具体的には、塩化ステアリルトリメチルアンモニウム、塩化ベヘニルトリメチルアンモニウム、塩化ジステアリルジメチルアンモニウム、塩化ジベヘニルジメチルアンモニウム等の陽イオン性界面活性剤、あるいは、両性界面活性剤、スクワレン、ラノリン、パーフルオロポリエーテル、カチオン性ポリマー等の感触向上剤、プロピレングリコール、グリセリン、ソルビトール等の保湿剤、メチルセルロース、カルボキシビニルポリマー、ヒドロキシエチルセルロース、ポリオキシエチレングリコールジステアレート、エタノール等の粘度調整剤、パール化剤、香料、色素、染料、噴射剤、ビタミン、養毛料、ホルモンなどの薬剤、トリクロサン、トリクロロカルバン等の殺菌剤、グリチルリチン酸カリウム、酢酸トコフェロール等の抗炎症剤、ジंकピリチオン、オクトピロックス等の抗フケ剤、メ



チルパラベン、ブチルパラベン等の防腐剤、噴霧剤、その他Encyclopedia of Shampoo Ingredients (Micelle press、1985) に収載されている成分が挙げられる。尚、毛髪用化粧品として具体的には、シャンプー、ヘアリンス、ヘアコンディショナー、ヘアトリートメント、セットローション、ブロースタイリング剤、ヘアスプレー、泡状スタイリング剤、ジェル状スタイリング剤、ヘアリキッド、ヘアトニック、ヘアクリーム、育毛剤、養毛剤、染毛剤が挙げられる。

### 【0037】

#### 【実施例】

以下、本発明を実施例により詳細に説明する。実施例中、粘度は25℃における値である。架橋シリコーン粒子の水系サスペンションおよび架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンについて、下記の通り評価した。

### 【0038】

#### 〔水系サスペンション中の架橋シリコーン粒子の平均粒径〕

水系サスペンションをレーザー回折式粒度分布測定装置(株式会社堀場製作所製のLA-500)により測定して、得られたメジアン径(累積分布の50%に相当する粒径:50%粒径)を架橋シリコーン粒子の平均粒径とした。また、累積90%の粒径を90%粒径とした。

#### 〔水系エマルジョン中のオイル液滴の平均粒径〕

水系エマルジョンをレーザー回折式粒度分布測定装置(株式会社堀場製作所製のLA-500)により測定して、得られたメジアン径(累積分布の50%に相当する粒径:50%粒径)をオイル液滴の平均粒径とした。また、累積90%の粒径を90%粒径とした。

#### 〔水系エマルジョン中の架橋シリコーン粒子の平均粒径〕

水系エマルジョンから水を除去して得られた架橋シリコーン粒子を含有するオイル組成物を顕微鏡により観察して、10個の架橋シリコーン粒子の粒径の平均値を求めた。

#### 〔安定性〕

水系サスペンションまたは水系エマルジョンを固形分濃度が50重量%となるように水で希釈した後、225mlのマヨネーズ瓶に150mlを仕込み、50

℃で2週間放置した。2週間後に分離した水層の厚みを測定することにより、安定性を評価した。なお、この厚みが小さいほど安定性が良好であることを示している。

#### 【0039】

##### 【実施例1】

約  $20\text{ mm}^2/\text{s}$  の環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を2.5重量%含有する、 $400\text{ mm}^2/\text{s}$  の分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン94.8重量部、 $50\text{ mm}^2/\text{s}$  の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルヒドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量=0.31重量%)5.2重量部(前記ジメチルポリシロキサン中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)を均一に混合した。次いでこれに、N-ラウロイル, N-メチルタウリンナトリウム0.5重量部および純水20重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水39重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0040】

一方、白金の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液1重量部を、イオン交換水1重量部および前記と同じN-ラウロイル, N-メチルタウリンナトリウム0.01重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が $0.3\text{ }\mu\text{m}$ である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0041】

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で5ppmとなる量)を加えて均一に攪拌した後、1日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を含有する架橋シリコーン粒子の水系サスペンションを調製した。得られた水系サスペンションについて、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表1に示した。

## 【0042】

## 【実施例 2】

約  $20\text{ mm}^2/\text{s}$  の環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を 2.5 重量% 含有する、 $400\text{ mm}^2/\text{s}$  の分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン 94.8 重量部、 $50\text{ mm}^2/\text{s}$  の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルヒドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量 = 0.31 重量%) 5.2 重量部(前記ジメチルポリシロキサン中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が 0.95 となる量)を均一に混合した。次いでこれに、N-ミリストイル, N-メチルタウリンナトリウム 0.5 重量部および純水 20 重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水 39 重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

## 【0043】

一方、白金の 1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の 1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液 1 重量部を、イオン交換水 1 重量部および前記と同じ N-ミリストイル, N-メチルタウリンナトリウム 0.01 重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が  $0.3\text{ }\mu\text{m}$  である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

## 【0044】

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で 5 ppm となる量)を加えて均一に攪拌した後、1 日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を含有する架橋シリコーン粒子の水系サスペンションを調製した。得られた水系サスペンションについて、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表 1 に示した。

## 【0045】

## 【比較例 1】

約  $20\text{ mm}^2/\text{s}$  の環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を 2.5 重量% 含有

する、 $400\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン 94.8 重量部、 $50\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルヒドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量=0.31 重量%) 5.2 重量部(前記ジメチルポリシロキサン中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)を均一に混合した。次いでこれに、ラウリル硫酸ナトリウム 0.5 重量部および純水 20 重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水 39 重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0046】

一方、白金の 1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の 1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液 1 重量部を、イオン交換水 1 重量部および前記と同じラウリル硫酸ナトリウム 0.01 重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が  $0.3\text{ }\mu\text{m}$  である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0047】

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で 5 ppm となる量)を加えて均一に攪拌した後、1 日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を含有する架橋シリコーン粒子の水系サスペンションを調製した。得られた水系サスペンションについて、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表 1 に示した。

#### 【0048】

##### 【比較例 2】

約  $20\text{ mm}^2/\text{s}$ の環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を 2.5 重量%含有する、 $400\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン 94.8 重量部、 $50\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルヒドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量=0.31 重量%) 5.2 重量部(前記ジメチルポリシロキサ

ン中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)を均一に混合した。次いでこれに、ポリオキシエチレン(2)ラウリル硫酸ナトリウム25%水溶液2.0重量部および純水28.5重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水39重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0049】

一方、白金の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液1重量部を、イオン交換水0.6重量部および前記と同じポリオキシエチレン(2)ラウリル硫酸ナトリウム25%水溶液0.04重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が $0.3\mu\text{m}$ である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0050】

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で5ppmとなる量)を加えて均一に攪拌した後、1日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を含有する架橋シリコーン粒子の水系サスペンションを調製した。得られた水系サスペンションについて、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表1に示した。

#### 【0051】

【表1】

	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2
架橋シリコーン粒子の粒径				
平均粒径( $\mu\text{m}$ )	4.7	4.8	4.9	5.1
90%粒径	8.6	8.7	8.6	8.9
安定性(mm)	5-8	5-8	5-8	5-8

## 【0052】

## 【実施例 3】

400mm<sup>2</sup>/sの分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体(ビニル基の含有量=1.18重量%)18.02重量部、55mm<sup>2</sup>/sの分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルヒドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量=0.48重量%)1.98重量部(前記メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)、および100mm<sup>2</sup>/sの分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン80重量部を均一に混合した。次いでこれに、N-ラウロイル, N-メチルタウリンナトリウム0.5重量部および純水20重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水39重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

## 【0053】

一方、白金の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液1重量部を、イオン交換水1重量部および前記と同じN-ラウロイル, N-メチルタウリンナトリウム0.01重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が0.3μmである白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

## 【0054】

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で5ppmとなる量)を加えて均一に攪拌した後、1日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、架橋シリコーン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを調製した。得られた水系エマルジョンについて、ジメチルポリシロキサンオイル液滴の平均粒径、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表2に示した。

## 【0055】

## 【実施例 4】

400mm<sup>2</sup>/sの分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体(ビニル基の含有量=1.18重量%)18.02重量部、55mm<sup>2</sup>/sの分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルヒドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量=0.48重量%)1.98重量部(前記メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)、および100mm<sup>2</sup>/sの分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン80重量部を均一に混合した。次いでこれに、N-ミリストイル, N-メチルタウリンナトリウム0.5重量部および純水20重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水39重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0056】

一方、白金の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液1重量部を、イオン交換水1重量部および前記と同じN-ミリストイル, N-メチルタウリンナトリウム0.01重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が0.3μmである白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0057】

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で5ppmとなる量)を加えて均一に攪拌した後、1日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、架橋シリコーン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを調製した。得られた水系エマルジョンについて、ジメチルポリシロキサンオイル液滴の平均粒径、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表2に示した。

#### 【0058】

#### 【比較例3】

400mm<sup>2</sup>/sの分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体(ビニル基の含有量=1.18重量%)18.

0.2重量部、 $55\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルヒドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量=0.48重量%)1.98重量部(前記メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)、および $100\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン80重量部を均一に混合した。次いでこれに、ラウリル硫酸ナトリウム0.5重量部および純水20重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水39重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0059】

一方、白金の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液1重量部を、イオン交換水1重量部および前記と同じラウリル硫酸ナトリウム0.01重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が $0.3\text{ }\mu\text{m}$ である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0060】

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で5ppmとなる量)を加えて均一に攪拌した後、1日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、架橋シリコーン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを調製した。得られた水系エマルジョンについて、ジメチルポリシロキサンオイル液滴の平均粒径、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表2に示した。

#### 【0061】

##### 【比較例4】

$400\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体(ビニル基の含有量=1.18重量%)18.02重量部、 $55\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルヒドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の



含有量=0.48重量%)1.98重量部(前記メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)、および $100\text{mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン80重量部を均一に混合した。次いでこれに、ポリオキシエチレン(2)ラウリル硫酸ナトリウム25%水溶液2.0重量部および純水28.5重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水39重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0062】

一方、白金の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液1重量部を、イオン交換水0.6重量部および前記と同じポリオキシエチレン(2)ラウリル硫酸ナトリウム25%水溶液0.04重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が $0.3\mu\text{m}$ である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

#### 【0063】

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で5ppmとなる量)を加えて均一に攪拌した後、1日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、架橋シリコーン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを調製した。得られた水系エマルジョンについて、ジメチルポリシロキサンオイル液滴の平均粒径、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表2に示した。

#### 【0064】

【表 2】

	実施例3	実施例4	比較例3	比較例4
ジメチルポリシロキサンオイル 液滴の粒径				
平均粒径( $\mu\text{m}$ )	4.0	4.3	4.3	4.5
90%粒径	7.4	8.4	7.5	8.0
架橋シリコン粒子の粒径				
平均粒径( $\mu\text{m}$ )	3	3	3	3
安定性(mm)	4-7	4-7	4-7	4-7

【0065】

## 【実施例 5】

実施例 1 で調製した架橋シリコン粒子の水系サスペンションまたは、実施例 4 で調製した架橋シリコン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを用いて、表 3 に示した組成の皮膚用シャンプー組成物①、②を調製した。この皮膚用シャンプー組成物の配合安定性および使用感を、下記の方法に従って測定した。その結果を表 3 に示した。

## 〔配合安定性〕

調製直後および 50℃にて 1 ヶ月間保存後のシャンプー組成物の外観を評価した。評価結果は、次のようにして表した。

◎：均一で変化は認められなかった。

△：上部に若干のクリーミングが認められた。

×：2 層に完全に分離した。

## 〔使用感〕

パネラー 5 人の腕部を、皮膚用シャンプー組成物を用いて 30 秒間洗浄した後、流水で洗い流した。次いで乾いたタオルで水分をよく拭き取り、乾燥後の感触を評価した。

## 【0066】

## 【比較例 5】

比較例 1 で調製した架橋シリコーン粒子の水系サスペンションまたは、比較例 4 で調製した架橋シリコーン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを用いて、表 3 に示した組成の皮膚用シャンプー組成物③、④を調製した。この皮膚用シャンプー組成物の配合安定性および使用感を、実施例 5 と同様にして測定した。その結果を表 3 に示した。

## 【0067】

【表 3】

皮膚用シャンプー組成物			実施例 5		比較例 5	
			①	②	③	④
組成 %	ラウロイルサルコシナトリウム (30%水溶液)		15.0	15.0	15.0	15.0
	アルキル硫酸ナトリウム 2 ナトリウム (27%水溶液)		15.0	15.0	15.0	15.0
	水系サスペンション (実施例 1)		10.0	—	—	—
	水系サスペンション (比較例 1)		—	—	10.0	—
	水系エマルジョン (実施例 4)		—	10.0	—	—
	水系エマルジョン (比較例 4)		—	—	—	10.0
	付交換水		60.0	60.0	60.0	60.0
結果	配合安定性	調製直後	◎	◎	◎	◎
		50℃, 1 ヶ月後	◎	◎	△	△
	感触評価		滑らか、 すべすべ でしつと り感良好	滑らか、 すべすべ でしつと り感良好	滑らかさ 若干不足 僅かに かさかさ 感あり	滑らかさ 若干不足 僅かに かさかさ 感あり

【0068】

## 【発明の効果】

本発明の架橋シリコーン粒子の水系サスペンションおよび架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンは、界面活性剤として特定のN-アシル、N-ヒドロカーボントウリンまたはその塩を使用しているので安定性に優れ、かつ、環境に対する負荷や人体に対する影響が少ないという特徴を有する。このような本発明の水系サスペンションおよび水系エマルジョンは、人体への適合性に優れるとともに潤いや滑らかさに優れた化粧機能性を有するので、化粧料原料として極めて有用である。

## 【書類名】

要約書

## 【要約】

【課題】 安定性に優れ、しかも、環境に対する負荷や人体に対する影響が少ない架橋シリコーン粒子の水系サスペンションおよび架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョン、これらを使用した化粧品原料を提供する。

【解決手段】 (A)平均粒径 $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$ の架橋シリコーン粒子、(B)N-アシル, N-ハイドロカーボンタウリンおよび/またはその塩、(C)水からなることを特徴とする架橋シリコーン粒子の水系サスペンション、(A)平均粒径 $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$ の架橋シリコーン粒子、(D)オイル、(B)N-アシル, N-ハイドロカーボンタウリンおよび/またはその塩、(C)水からなり、水中に分散している(D)成分の液滴中に(A)成分が含有されていることを特徴とする架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョン、および、該水系サスペンションまたは該水系エマルジョンからなる化粧品原料。

## 【選択図】

なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2002-253540
受付番号	50201296904
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0095
作成日	平成14年 9月 2日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成14年 8月30日
-------	-------------

特願 2 0 0 2 - 2 5 3 5 4 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 1 1 0 0 7 7 ]

1. 変更年月日

1 9 9 6 年 1 0 月 1 4 日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都千代田区丸の内一丁目 1 番 3 号

氏 名

東レ・ダウコーニング・シリコン株式会社